



EVALUACION DE CAMINOS DE DIFUSIÓN DE Al EN UAl₄

Laura Kniznik^{(1,2)*}, Paula R. Alonso^(1,2), Pablo H. Gargano^(1,2) y Gerardo H. Rubiolo^(1,2,3)

⁽¹⁾Gerencia Materiales, Comisión Nacional de Energía Atómica, Av. General Paz 1499 (B1650KNA) San Martín, Buenos Aires, Argentina

⁽²⁾Instituto Sabato – UNSAM/CNEA, Av. General Paz 1499 (B1650KNA) San Martín, Buenos Aires, Argentina

⁽³⁾CONICET, Av. Rivadavia 1917 (C1033AAJ) CABA, Argentina.

*Correo Electrónico: kniznik@cnea.gov.ar

RESUMEN

Obtenida la estructura de defectos puntuales estables y las concentraciones de defectos en equilibrio térmico para cada composición de Al del compuesto UAl₄ en [1,2], identificamos en este trabajo los mecanismos más probables de movilidad de Al en UAl₄, y analizamos los estados de transición en la difusión de Al en UAl₄ mediante el método Nudged Elastic Band (NEB) implementado en el código VASP. Calculamos utilizando métodos de primeros principios la variación de la energía total del compuesto en función del camino de difusión del aluminio, con el objetivo de encontrar los puntos de ensilladura para pasar entre dos posiciones de equilibrio y así obtener el camino de mínima energía para la difusión. Esto nos permitió proponer dos mecanismos más probables para la difusión de átomos de Al en el lado rico en Al del intermetálico: a) mecanismo de puente antiestructural (ASB) y b) mecanismo de vacancia entre sitios primeros vecinos de aluminio AlI (NN). Al calcular la energía de migración para ambos mecanismos conseguimos estimar ambas energías de activación. La energía de activación del mecanismo ASB resultó menor que la del mecanismo NN pero el primer mecanismo fue desestimado por dos motivos: a) la energía de activación es la mitad de la observada experimentalmente y b) siguiendo la literatura, el mecanismo ASB necesita una concentración umbral de antisitios relativamente alta para que el camino de difusión resulte de largo alcance.

En base a todos los resultados y discusiones realizados, proponemos que el mecanismo de difusión de aluminio en UAl₄ ocurre por el mecanismo NN con una energía de activación de 1.90eV que compara relativamente bien con el valor 2.06eV observado experimentalmente o con el valor 2.17 eV obtenido en [3] utilizando un modelo semi-empírico.

ABSTRACT

Once obtained the stable structure of point defects and concentrations of defects in thermal equilibrium for each composition of Al of the compound UAl₄ in [1,2], we identified in this work the more likely mechanisms for Al mobility in UAl₄, and analyzed transition states in the diffusion of Al in UAl₄ by Nudged Elastic Band (NEB) method implemented in VASP code. We have calculated using first principles methods the compound total energy variation according to the migration path of aluminum, in order to find the saddle points between two equilibrium positions and to obtain the minimum migration energy path. This allowed us to propose two most likely mechanisms for the diffusion of Al atoms in the rich side Al intermetallic: a) antistructural bridge mechanism (ASB) and b) vacancy mechanism between first neighbors aluminum AlI sites (NN). When calculating the energy of migration for both mechanisms we estimated both activation energies. The activation energy of ASB mechanism was lower than the NN mechanism but the first mechanism was dismissed for two reasons: a) the activation energy is half the experimentally observed b) following the literature, the ASB mechanism needs an threshold antisite concentration relatively high so that the diffusion path result a long-range one.

Based on all results and discussions we propose that the aluminum diffusion mechanism occurs in UAl₄ by means of NN mechanism with an activation energy of 1.90eV which compares relatively well with experimentally observed value 2.06eV or the value 2.17 eV obtained in [3] using a semi-empirical model.

REFERENCIAS

1. P. H. Gargano, L. Kniznik, P. R. Alonso, M. Forti and G. H. Rubiolo, “Concentration of constitutional and thermal defects in UAl₄”; Journal of Nuclear Materials, en prensa (2016).
2. L. Kniznik, P. R. Alonso, P. H. Gargano and G. H. Rubiolo, “Energetics and electronic structure of UAl₄ with point defects”; Journal of Nuclear Materials, Vol. 466 (2015), p. 539-550.
3. L. Kniznik, P. R. Alonso, P. H. Gargano and G. H. Rubiolo, “Simulation of UAl₄ growth in an UAl₃/Al diffusion couple”; Journal of Nuclear Materials, Vo. 414 (2011), p. 309-315.

TÓPICO DEL CONGRESO O SIMPOSIO: T15

PRESENTACIÓN (ORAL O PÓSTER): P (Póster)